

Мильман И.И., Сюрдо А.И., Абашев Р.М., Цмокалюк А.Н.,  
Берденев Н.Е., Агданцева Е.Н., Попова М.А.

## ЭПР ДОЗИМЕТР ДЛЯ РУТИННЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

*Аннотация.* Приведен обзор радиационных технологий, использующих ионизирующие излучения в широком диапазоне доз и энергий. Обоснована необходимость контроля доз в облучаемых объектах и диагностики полей излучений. Отмечено, что в мировой практике эти задачи решаются с помощью ЭПР-дозиметрической системы с использованием детекторов на основе L- $\alpha$  – аланина. Получена серия экспериментальных результатов, показывающих возможность применения отечественной ЭПР/ПТФЭ дозиметрической системы для рутинных измерений доз при проведении радиационной стерилизации изделий медицинской техники.

*Ключевые слова:* электронный парамагнитный резонанс (ЭПР), L- $\alpha$  – аланин, политетрафторэтилен (ПТФЭ, тефлон-4), референсные эталонные дозиметры, рабочие дозиметры.

*Abstract.* A brief list of the main directions in radiation technologies using ionizing radiation in a wide range of doses and energies is given. The necessity of dose control in irradiated objects and diagnostics of radiation fields is proven. It is noted that in world practice these problems are solved using an EPR dosimetry system using detectors based on L- $\alpha$  – alanine. A series of experimental results was obtained showing the possibility of using Russian EPR/PTFE dosimetry system for routine dose measurements during radiation sterilization of medical equipment.

*Keywords:* electron paramagnetic resonance (EPR), L- $\alpha$  – alanine, polytetrafluorethylene (PTFE, teflon-4), reference dosimeters, working dosimeters.

### Введение

В настоящее время исследования и технологические разработки в области радиационной технологии (РТ) проводятся в следующих основных направлениях: радиография и интроскопия крупногабаритных объектов, модификация материалов, стерилизация медицинских изделий, радиационная обработка пищевых продуктов, диагностика и терапия злокачественных новообразований и неопухолевых заболеваний, обеззараживание токсичных отходов производства. Многие из этих направлений используют гамма – изотопные источники и пучки электронов, получаемые с помощью электронных ускорителей. В зависимости от решаемых задач в РТ используют электроны с энергиями до 50МэВ, при этом требуемая доза облучения может находиться в пределах  $0,5-10^6$ Гр. [1,2]. Существенно более широкая номенклатура ионизирующих излучений используется в ядерной медицине. Для лучевой терапии наиболее эффективным применением оказались

высокоэнергетические протоны, ускоренные ионы углерода, водорода, гелия и кислорода с энергиями до 400 МэВ, а доставляемые в мишень дозы за цикл фракционного облучения не превышают 2 Гр. [3-5]. Лучевая терапия быстрыми нейтронами (6,3 МэВ) начинает входить в арсенал методов ядерной медицины [6].

Неотъемлемой частью РТ во всех ее направлениях является дозиметрический контроль, наиболее жесткие требования к которому, предъявляются при модификации материалов, стерилизации медицинских изделий, радиационной обработке пищевых продуктов, диагностике и терапии. В современных дозиметрических системах, предназначенных для регистрации фотонных и корпускулярных излучений, в широком интервале доз и энергий, используются ионизационные камеры, полупроводниковые и сцинтилляционные детекторы, радиохромные пленки, термолюминесцентные и оптически стимулированные детекторы, особое место занимают дозиметрические системы, основанные на измерении электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) [7-11]. ЭПР-спектрометрия, как метод радиационной дозиметрии, была предложена несколько десятилетий назад. В основе метода лежит зависимость величины сигнала ЭПР от концентрации неспаренных электронов, образующихся под действием ионизирующих излучений во многих материалах, связанной с поглощенной дозой. Достоинством метода является высокая точность, неразрушающее считывание информации, возможность многократного использования одного и того же детектора без влияния на сигнал.

В настоящее время за рубежом ЭПР/аланиновая дозиметрия обеспечивается специализированными высоко производительными ЭПР спектрометрами с комплектами аланиновых детекторов. Так, например, аланиновая ЭПР дозиметрическая система MS 5000 (Magnettech GmbH, Берлин, Германия), работающая на частоте 9,2-9,6 ГГц, в диапазоне больших доз, от 0.5, до более чем 200 кГр, затрачивает на одно измерение 10 с. В диапазоне низких доз, менее 1 до 20 Гр, время измерения возрастает до 120 с [12]. Отечественные аналоги подобного оборудования отсутствуют.

Целью данной работы являлись выбор и исследование ЭПР дозиметрического материала, пригодного для рутинных измерений в технологии стерилизации одноразовых медицинских изделий и продуктов питания электронным излучением ускорителя в качестве вторичного эталона или рабочего детектора [13-16]. Актуальность темы продиктована тем, что практически все направления в РТ связаны с необходимостью проведения большого объема относительных и абсолютных измерений доз. Требуется

доступный, недорогой материал отечественного производства с налаженной технологией изготовления, близкий по свойствам с ЭПР-детектором на основе L- $\alpha$  – аланина.

### **Методика и образцы**

В качестве объекта исследования в работе выбран политетрафторэтилен (ПТФЭ,  $(C_2F_4)_n$ , тефлон-4) отечественного производства. В предварительных исследованиях было обнаружено, что в образцах ПТФЭ образуются парамагнитные центры, регистрируемые в спектрах ЭПР. При этом было установлено, что затухание сигнала ЭПР не превышало 2% за год хранения при нормальных условиях. Возможность применения ЭПР/ПТФЭ дозиметрических систем обсуждается и в зарубежных исследованиях [17-20]. Обоснованием выбора объекта исследования являлись уникальные свойства ПТФЭ: химическая инертность, высокая температура разложения ( $415^{\circ}C$ ), доступность и возможность создания воспроизводимых геометрических форм детекторов с помощью механической обработки. При выборе материала, в плане расширения его практического применения, учитывались его изотропность, тканеэквивалентность и биологическая совместимость. Параллельно с ПТФЭ детекторами, в тех же экспериментальных условиях, измерялись ЭПР спектры импортных не калиброванных аланиновых детекторов, виде пленок и таблеток фирмы Kodak, признанных Международным Агентством по Атомной Энергии (IAEA) стандартными ЭПР – детекторами для измерения высоких доз облучения в рутинных и эталонных измерениях [9].

Исследуемые образцы детекторов на основе тефлона-4 Российского производства имели цилиндрическую форму высотой 1см и диаметром 1,5мм. Облучение образцов производилось в центре радиационной стерилизации УрФУ, включающем 10МэВ линейный ускоритель электронов UELR-10-10S и конвейерную линию подачи продуктов в позицию облучения. Измерения спектров ЭПР проводились с помощью ЭПР спектрометра ELEXSYS E500. В качестве первичного эталона поглощенной дозы электронного излучения для передачи единиц поглощенной дозы аланиновым и тефлоновым детекторам (рабочим эталонам) использовался межгосударственный стандартный образец поглощенной дозы фотонного и электронного излучений (сополимер с феназиновым красителем) СО ПД(Ф)Р-5/50 с погрешностью аттестации не более  $\pm 7\%$ , при  $P=0,95$ ; N 1735:2011 в Реестре МСО. Облучение и измерения ЭПР сигналов проводились при комнатной температуре. Рабочая частота

спектрометра была равной 9,88ГГц, мощность излучения 2мВт, амплитуда модуляции 6Гс, диапазон изменения магнитного поля 150Гс. Величина сигнала ЭПР, связанная с поглощенной дозой облучения, оценивалась по максимальной амплитуде производной спектра поглощения или по площади спектра поглощения в относительных единицах.

### Результаты и обсуждение

На Рис.1 показан контейнер для облучения, транспорта и хранения L-α-аланиновых (полоска) и ПТФЭ ЭПР-детекторов.

Здесь же показана окрашенная излучением пленка эталонного детектора СО ПД(Ф)Р-5/50.

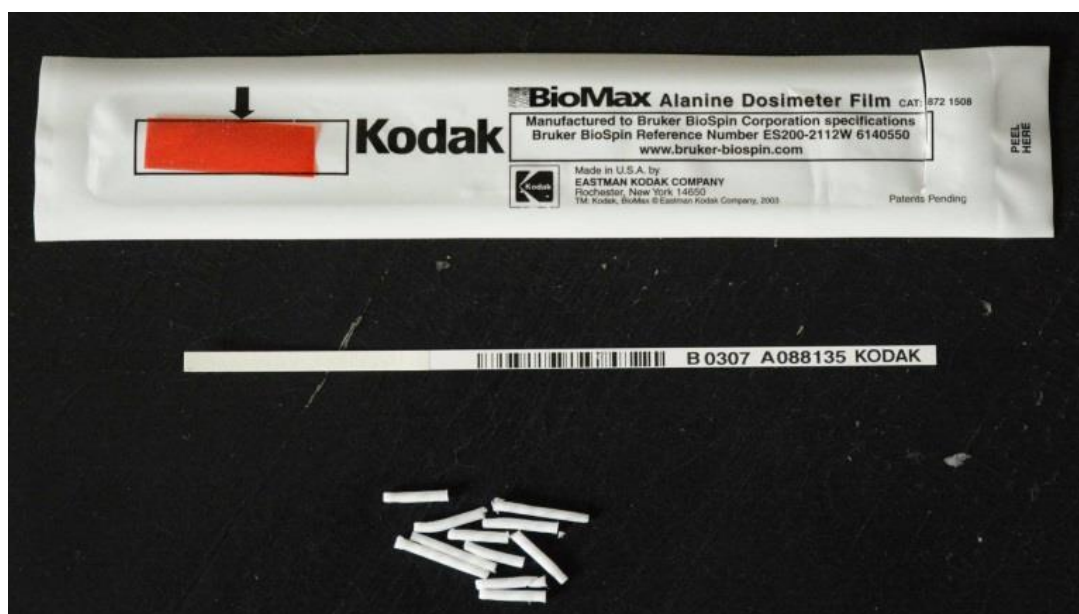


Рисунок 1 – Сверху вниз. Контейнер для облучения, транспорта и хранения L-α – аланиновых (полоска) и тефлоновых ЭПР-детекторов. Стрелкой отмечена окрашенная излучением пленка эталонного образца СО ПД(Ф)Р-5/50

Принятая методика обработка спектра в ЭПР–дозиметрии предусматривает два варианта: по амплитуде самого высокого пика первой производной сигнала поглощения (Н) или по площади под кривой поглощения ( $S_1+S_2$ ). На Рис. 2 представлены оба варианта обработки спектра на примере ЭПР-спектра ПТФЭ-детектора.

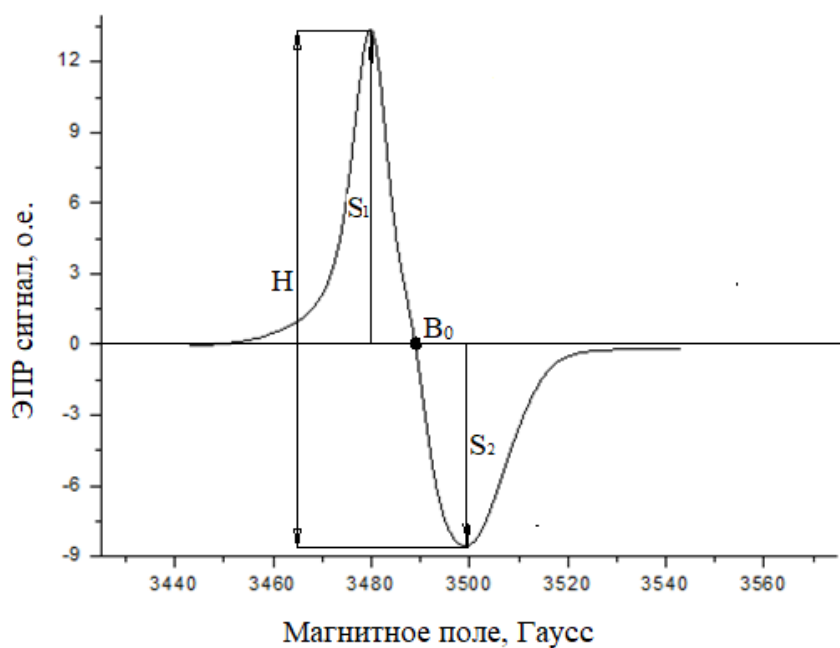


Рисунок 2 – Параметры производной ЭПР спектра поглощения ПТФЭ детектора:  $H$  – высота,  $S_1 + S_2$  – площадь,  $B_0$  – величина резонансного магнитного поля

В таблице 1 приведены параметры ЭПР спектров ПТФЭ детекторов в диапазоне доз облучения 12,2-66,6 кГр. Рассчитанное значение  $g$ -фактора (фактора Ланде) по среднему значению  $B_0$  оказался равным 2,018, близким к известному из литературы значению 2,016 для облученного ПТФЭ. Это указывает на то, что в указанном диапазоне доз не происходит структурных нарушений детектора, влияющих на его электронные свойства.

Таблица 1 – Доза облучения и параметры ЭПР спектра ПТФЭ детектора

№	$D_n$ (кГр)	$H$ (о.е.)	$S_1 + S_2$ (о.е.)	$B_0$ (Гаусс)
1	12,2	21,90	286,17	3494,0
2	23,5	40,46	530,92	3494,5
3	34,0	58,15	770,57	3493,7
4	45,6	71,26	962,06	3493,0
5	54,9	83,01	1104,09	3492,6
6	66,6	102,08	1364,54	3492,5

Данные таблицы 1 использованы для построения зависимости величины сигнала ЭПР от дозы облучения ПТФЭ-детектора, построенные по пику ( $H$ ) и площади ( $S_1 + S_2$ ), Рис. 3.

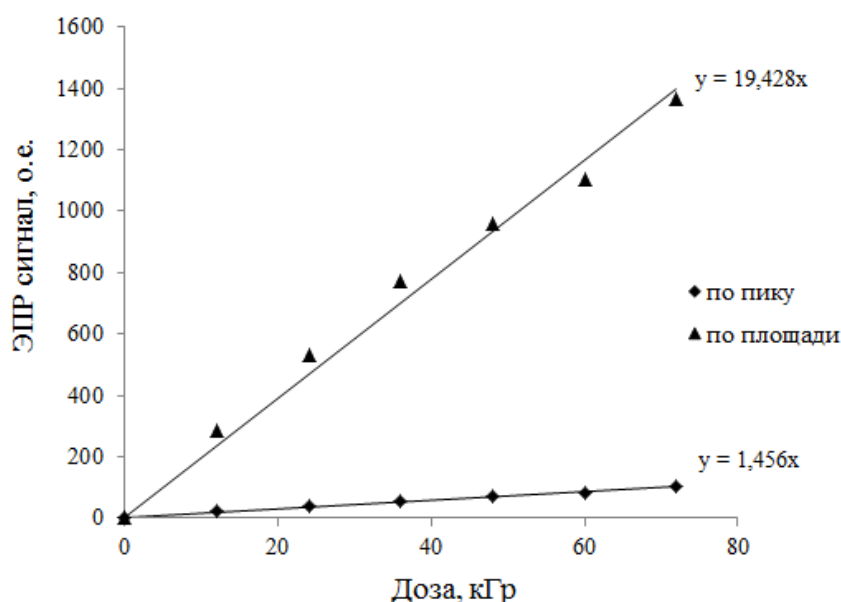


Рисунок 3 – Зависимость величины сигнала ЭПР от дозы облучения ПТФЕ – детектора

В таблице 2 приведены параметры ЭПР спектров L-α-аланиновых детекторов в диапазоне доз облучения 12,2-66,6кГр.

Таблица 2 – Доза облучения и параметры ЭПР спектра L-α-аланинового детектора

№	D <sub>n</sub> (кГр)	H (о.е.)	B <sub>0</sub> (Гаусс)
1	12,2	35,12	3521,0
2	23,5	57,68	3545,0
3	34,0	87,83	3520,9
4	45,6	112,15	3542,0
5	54,9	131,46	3522,0
6	66,6	150,77	3545,1

ЭПР спектр облученного L-α-аланинового детектора приведен на Рис.4. Рассчитанное значение g-фактора оказался равным 2,0020, близким к g -фактора свободного электрона. Дозовая зависимость величины сигнала ЭПР для L-α-аланинового детектора, построенная по максимальному пику, приведена на Рис.5.

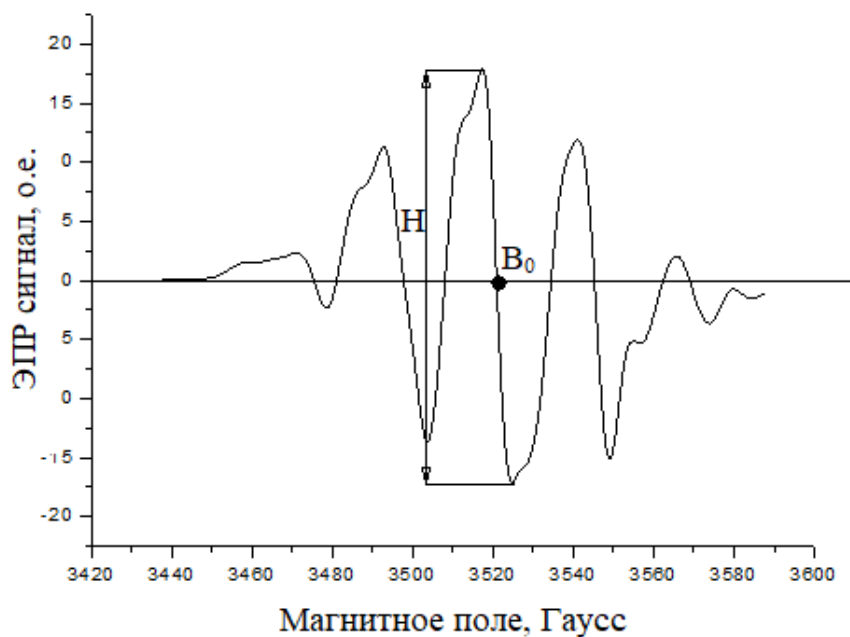


Рисунок 4 – ЭПР спектр L-α – аланинового детектора

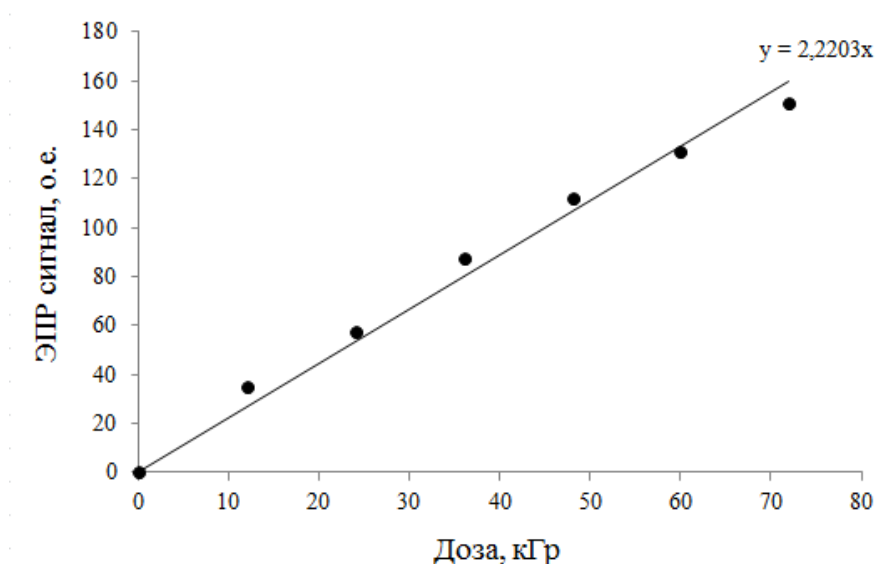


Рисунок 5 – Зависимость величины сигнала ЭПР от дозы облучения L-α – аланинового детектора

Результаты проведенных исследований, представленные на Рис.3 и 5, характеризуются линейной зависимостью величины сигнала ЭПР в диапазоне доз 10-50 кГр, отсутствием нулевого сигнала и деградации электронных свойств ПТФЭ и L-α – аланиновых детекторов. Параметры измеренных спектров полностью совпадали с имеющимися в литературе, в том числе и для ПТФЭ-детекторов зарубежного происхождения. Особенно важным для практического применения оказалось то, что образцы ПТФЭ-детекторов изготавливались в

лабораторных условиях в требуемом количестве из доступного отечественного материала. Таким детекторам могла быть придана любая воспроизводимая геометрическая форма, согласованная с конструкцией резонатора ЭПР спектрометра любого типа. ЭПР/ПТФЭ дозиметрическая система оказывается особенно полезной при проведении мероприятий до аудиторского контроля радиационной технологии, требующих большого объема измерений параметров излучения и дозового распределения в облучаемом объекте и окружающем пространстве.

### **Заключение**

В диапазоне доз, рекомендуемом для стерилизации разовых медицинских изделий и пищевых продуктов, выполнены калибровочные облучения ПТФЭ ЭПР-детекторов и измерены их ЭПР-спектры. Облучения производились с помощью промышленного ускорителя электронов вместе с признанными на национальном уровне референсными эталонными дозиметрами. Детекторы, калиброванные по первичному или референсному эталонному дозиметру, являются рабочими детекторами, и могут быть рекомендованы для использования их в составе ЭПР дозиметрической системы для повседневного контроля качества радиационных технологий, мониторинга и картирования поглощенной дозы.

*Работа выполнена в рамках государственных заданий Минобрнауки России (темы «Экспертиза», № 0311-2019-0023 и «Диагностика», № АААА-А18-118020690196-3).*

### **Библиографический список**

1. Алимов А. С. Практическое применение электронных ускорителей / А. С. Алимов ; Науч. исслед. ин-т ядер. физики им. Д. В. Скобельцына Моск. гос. ун-та им. М. В. Ломоносова. – Препр. – Москва : НИИЯФ МГУ, 2011. – 877 с.
2. 17<sup>th</sup> International Meeting on Radiation Processing : Programme and Abstracts Conference (Shanghai, 4–8 Nov 2013). – Shanghai, 2013. – URL: [https://www.aconf.org/conf\\_21867.html](https://www.aconf.org/conf_21867.html) (date of access: 13.09.2019).
3. Experimental dosimetric comparison of  $^1\text{H}$ ,  $^4\text{He}$ ,  $^{12}\text{C}$  and  $^{16}\text{O}$  scanned ion beams / T. Tessonier, A. Mairani, S. Brons [et al.] // Physics in Medicine & Biology. – 2017. – Vol. 62. – P. 3958–3982.
4. Durante M. Nuclear physics in particle therapy: a review / M. Durante, H. Paganetti // Reports on Progress in Physics. – 2016. – Vol. 79. – P. 096702–096761.



5. Proton vs carbon ion beams in the definitive radiation treatment of cancer patients / H. Suita, T. F. Delaney, S. I. Goldberg, H. Paganetti // *Radiotherapy and Oncology*. – 2010. – Vol. 95. – P. 3–22.
6. Мусабаева Л. И. Терапия быстрыми нейтронами в онкологии / Л. И. Мусабаева, В. М. Головков // *Сибирский онкологический журнал*. – 2015. – № 2. – С. 88–94.
7. Ravotti F. Dosimetry Techniques and Radiation Test Facilities for Total Ionizing Dose Testing / F. Ravotti // *IEEE Transaction on Nuclear Science*. – 2018. – Vol. 65, Is. 8. – P. 1440–1464.
8. ESR dosimeter material properties of phenols compound exposed to radiotherapeutic electron beams / S. Gallo, G. Iacoviello, A. Bartolotta, M. Marrale // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. – 2017. – Vol. 407. – P. 110–117.
9. Bailiff I. K Retrospective and emergency dosimetry in response to radiological incidents and nuclear mass-casualty events: a review / I. K. Bailiff, S. Sholom, S. W.S. McKeever // *Radiation Measurements*. – 2016. – Vol. 94. – P. 83–139.
10. Aydas C. Identification of irradiated foodstuffs using ESR microwave saturation / C. Aydas, S. T. Cam // *Applied Radiation and Isotopes*. – 2017. – Vol. 122, Is. 4. – P. 14–20.
11. Aleksieva K. I. Various approaches in EPR identification of gamma-irradiated plant foodstuffs: a review / K. I. Aleksieva, D. Nicola, N. D. Yordanov // *Food Research International*. – 2018. – Vol. 105. – P. 1019–1028.
12. Alanine dosimetry system. Bench-Top ESR spectrometer. – Berlin, 2019. – URL: <https://www.magnettech.de/applications/alanine-dosimetry.html> (date of access: 13.09.2019).
13. ГОСТ 8.651–2016. Медицинские изделия. Радиационная стерилизация. Методика дозиметрии : дата введ. 2017–02–01 / Гос. система обеспечения единства измерений (ГСИ). – Москва : Стандартинформ, 2016. – URL: <http://docs.cntd.ru/document/1200140576> (дата обращения: 13.09.2019).
14. ГОСТ Р ИСО 11137-3-2008. Стерилизация медицинской продукции. Радиационная стерилизация. Часть 3. Руководство по вопросам дозиметрии : дата введ. 2010–01–01. – Москва : Стандартинформ, 2009. – URL: <http://docs.cntd.ru/document/1200075559> (дата обращения: 13.09.2019)
15. Guidelines for the development, validation and routine of industrial radiation processed. – Vienna : International Atomic Energy Agencyvienna, 2013. – (IAEA Radiation Technology series ; № 4). – URL: [https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/Pub1581\\_web.pdf](https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/Pub1581_web.pdf) (date of access: 13.09.2019).
16. ГОСТР ИСО/АСТМ 51431–2012. Руководство по дозиметрии при обработке пищевых продуктов электронными пучками и рентгеновским (тормозным) излучением. Practice for dosimetry in electron beam and X-ray (bremsstrahlung) irradiation facilities for food processing (IDT) : дата введ. 2014–01–01. – Москва : Стандартинформ, 2014. – URL: <http://docs.cntd.ru/document/1200102046> (дата обращения: 13.09.2019).

17. The degradation behavior and mechanism of polytetrafluoroethylene under low energy proton irradiation / Y. Wu, Ch. Sun, Y. Xing, J. Xiao. – DOI 10.1016/j.nimb.2018.06.005 // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2018. – Vol. 430. – P. 47–53.
18. Molecular level analyses of mechanical properties of PTFE sterilized by Co-60  $\gamma$ -ray irradiated for clinical use / M. Furuta, A. Matsugaki, T. Nakano [et al.] // Radiation Physics and Chemistry. – 2017. – Vol. 139. – P. 126–131.
19. Vehar D.W. EPR/PTFE Dosimetry for Test Reactor Environments / D. W. Vehar, P. J. Griffin, T. Quirk // Sandia National Laboratories Report, SAND. –Albuquerque, 2012. – P. 33–48.
20. Azorin J. A new ESR dosimeter based on polytetrafluoroethylene / J. Azorin, T. Rivera, T. Solis // Applied Radiation and Isotopes. – 2000. – Vol. 52. – P. 1243–1245.